



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 セルが閉塞されているハニカム構造物を形成する方法であつて、

ハニカム構造物の第 1 と第 2 の対向する末端面の間を通る長さ方向に互いに平行に延びる複数のセルを規定するセル壁のマトリックスを有する焼結ハニカム構造物を用意し、

容器を所望の深さまで閉塞材料で満たし、

閉塞すべき前記ハニカム構造物の第 1 の対向する末端面の少なくとも 1 つの開放セルに対応する少なくとも 1 つの孔または開口部を有するマスクを用意し、

少なくとも 1 つの孔が前記第 1 の対向する末端面の開放セルと一直線上にあるように前記マスクを該第 1 の対向する末端面上に配置し、

前記マスクを配置した第 1 の対向する末端面が下方に面し、前記閉塞材料と接するように、前記容器中に前記ハニカム構造物を配置し、

前記第 2 の対向する末端面に力を加えて、前記孔または開口部を通して前記閉塞材料を前記セルに押し込んで前記ハニカム構造物の前記開放セルを閉塞し、

前記ハニカム構造物を焼成して前記閉塞材料を前記セル壁に結合させる、各工程からなることを特徴とする方法。

【請求項 2】 前記閉塞材料が閉塞セメントおよび発泡剤からなることを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】 前記閉塞材料が、約 80% のベータスピキュメン粉末ガラス、約 4% - 15% の酸化亜鉛、約 3% の炭化ケイ素、約 2% - 4% のメチルセルロース結合剤、およびペーストを形成するのに十分な量の水からなることを特徴とする請求項 2 記載の方法。

【請求項 4】 前記閉塞材料が約 24% - 27% の水を含むことを特徴とする請求項 3 記載の方法。

【請求項 5】 前記ハニカム構造物を 1000°C から 1250°C の範囲の温度で焼成することを特徴とする請求項 3 記載の方法。

【請求項 6】 前記容器が、ベースプレートまたはプラットホーム上に搭載されたリングであり、前記ハニカム構造物に栓をするのに十分な閉塞材料で前記リングを所望の深さまで満たし、前記力を加え前記ハニカム構造物を焼成する前に、前記マスクを配した第 1 の対向する末端面が前記閉塞材料と接触するように前記ハニカム構造物を前記リング内に配置する各工程を含むことを特徴とする請求項 1 から 5 いずれか 1 項記載の方法。

【請求項 7】 前記第 2 の対向する末端面に力を加えながら前記ベースプレートを振動させて前記閉塞材料が前記ハニカム構造物の前記開放セル中に流入しやすくする工程を含むことを特徴とする請求項 6 記載の方法。

【請求項 8】 前記ハニカム構造物を前記リングから取り出して、セルの一部を塞いだハニカム構造物を焼結して前記閉塞材料を前記セル壁に結合する各工程を含むこ

とを特徴とする請求項 6 記載の方法。

【請求項 9】 前記マスクの少なくとも 1 つの開放孔が前記第 2 の対向する末端面の少なくとも 1 つの開放セルと一直線上にあり、そのセルが前記第 1 の対向する末端面で開いているように前記マスクを前記第 2 の対向する末端面に配置し、

前記マスクを配置した第 2 の対向する末端面が下方に面し前記閉塞材料と接触するように前記ハニカム構造物を配置して、

10 前記第 1 の対向する末端面に下方への力を加えて前記孔または開口部を通して前記閉塞材料が前記セル中に押し込まれられて、前記ハニカム構造物の少なくとも 1 つの開放セルを塞ぐ、各工程を含むことを特徴とする請求項 8 記載の方法。

【請求項 10】 前記マスクが、第 1 群のセルが前記第 1 の対向する末端面で開いて前記第 2 の対向する末端面で閉じており、第 2 群のセルが前記第 1 の対向する末端面で閉じて前記第 2 の対向する末端面で開いており、前記第 1 群のセルが前記第 2 群のセルとセル壁を共有する

20 ハニカム構造物を形成するように位置する複数の孔または開口部を含むことを特徴とする請求項 9 記載の方法。

【請求項 11】 前記ハニカム構造物のセルが閉塞工程の前に最初に水または前記閉塞材料の薄いスラリーによりぬらされることを特徴とする請求項 1 から 11 いずれか 1 項記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、閉塞セメント (plugging cement) 、およびハニカム構造物の開放セルまたは開放チャンネルを選択的に閉塞するかまたはシールして閉塞材料とセル壁との間の結合を強力にする方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 予め選択した開放セルを閉塞したハニカム構造物は、例えば、ディーゼル微粒子フィルタ (DPF) 等の多くの用途に有用である。ハニカム構造物の開放チャンネルを塞ぐ工程には、様々な方法が用いられている。閉塞したフィルタを製造する際には、押出ハニカム構造物を乾燥させて焼結し、強くて凝集力を有する物体を形成する。次いで焼結した物体に栓をして、乾燥した後、その構造物を再度焼成して栓を構成する閉塞材料を焼結する。2 番目の焼成または焼結工程中に、栓はセル壁またはチャンネルと反応して結合する。焼成を行なう際、セルが栓により完全には満たされていない場合、閉塞材料が圧縮されて結合が弱くなることもある。また、栓が弱くなるかまたは栓がなくなってしまうこともある。上記問題を緩和するために、ハニカム構造物および閉塞材料を 1 つの焼成段階で焼成することが提案されている。

40 40 【0003】 最も一般的な手法においては、セルを塞ぐ

べき焼結ハニカム構造物の末端面が垂直に上方に面するように、この構造物を閉塞装置中に配置することにより閉塞を行なっている。次いで、上方に面する末端面を覆うようにセメントを施し、このセメントをセル中に押し込む力を加えることにより、上方に面する末端面の予め選択した構造物のセルを塞ぐ。栓をされていないセルまたは栓がなくなったセルには、一度に1つずつ手で栓をする。この手法は明らかに手がかかるだけでなく、閉塞材料とセル壁との間の結合も良好なものとはなっていない。また、閉塞セメントを上方から下方に（すなわち、トップダウン方向）施すので、重力によりセメントが下方に引っ張られてセル壁から離れ、したがって、セル壁に対する結合が弱いテーパー形状または弾丸形状の栓が形成されてしまう。

【0004】栓をしたハニカム構造物を製造する方法がいくつか提案されている。例えば、ハニカムの選択された開放セルが突起物に噛み合うように、突起物を有するマスクをハニカム表面にはめ込み、突起物が選択されたセルに噛み合うまで、ハニカム構造物かまたはマスクのいずれかを振動させて回転させることによりこのような構造物に栓をすることが提案されている。別の手法においては、ハニカム構造物の末端部分をシールスラリー混合物中に浸漬し、続いてシールスラリーが施されたチャネルの末端に練ったペーストを流入させることが提案されている。

【0005】さらに、米国特許第4,455,180号、および再発行米国特許第31,405号に開示されているような閉塞材料を構成する特定のバッチ組成物が提案されている。これらの特許をここに引用する。

【0006】上述した方法によると、濃厚な水ベースのコーナーライト混合物をマスクを通じて上方から施して、ハニカム構造物の交互のセルに栓をしている。栓を上方から下方に施すので、栓が広がってそれぞれのセルを完全に満たすことを確実にする対抗力（opposing force）がない。その結果、結合力が弱いので、漏れが生じたり栓が失われてしまうことがある。

#### 【0007】

【発明が解決しようとする課題】ハニカム構造物に栓をして閉塞材料とセル壁との間を良好に結合させる一層改良された組成物および方法が引き続き求められている。

【0008】本発明の目的は、ハニカム構造物のセルに栓をして閉塞材料とセル壁との間の接触と結合を良好にする方法および組成物を提供することにある。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明によると、ハニカム構造物の第1および第2の対向する末端面の間を長さ方向に互いに平行に延びる複数のセルを規定するセル壁のマトリックスを有する焼結ハニカム構造物を提供し、ベースプレートの外側にリングを搭載し、前記ハニカム構造物に所望の深さまで栓をするのに十分な閉塞材料の

層で前記リングを満たし、少なくとも1つの孔または塞ぐべきハニカム構造物の第1の対向する末端面の少なくとも1つの開放セルに対応する開口部を有するマスクを用意し、前記孔が前記第1の対向する末端面の開放セルと一直線上にあるように該第1の対向する末端面の上に前記マスクを配置し、マスクを配置した第1の末端面が前記閉塞材料と接触するようにリング中にハニカム構造物を配置し、第2の対向する末端面に力を加えて前記孔を通じて前記閉塞材料を押し込んで前記ハニカム構造物の開放セルを塞ぐことにより本発明の上記目的と他の目的を達成することができる。その後、栓をしたハニカム構造物を焼結して閉塞材料をセル壁に結合させる。

【0010】例えば、第1の末端面に上述したように栓をした後、ディーゼル微粒子フィルタを形成することを目的として、第1群のセルが第1の末端面で開いて、第2の末端面では閉じており、第2群のセルが第1の末端面で閉じて、第2の末端面では開いており、第1群のセル各々が第2群のセルとセル壁を共有しているハニカム構造物を形成するように第2の末端面に栓をするために上述した工程を繰り返す。

【0011】別の実施態様において、本発明は、ベータスピジュメン粉末ガラスおよび発泡剤としての炭化ケイ素からなる閉塞セメントを用いることにより交互のセルに栓をする方法に関するものである。加熱をする際に、ガラスが溶融し、炭化ケイ素によりガラスが発泡して膨脹し、栓とセル壁との間の開放領域を塞ぐ。

#### 【0012】

【実施例】以下、図面に示す実施例を参照して本発明を詳細に説明する。

【0013】図1に示す栓をしたハニカムフィルタ体は、ハニカムフィルタ体の対向する末端面4および5の間でハニカムフィルタ体を通して長さ方向に互いに平行に延びる複数のセルまたはチャネル3を規定する交差セル壁のマトリックス2を有するセルラまたはハニカム構造物1からなる。図示したように、一方の群のセル7は一方の対向する末端面4で開いているが、他方の対向する末端面5では閉塞材料8により閉じられるか、塞がれるか、もしくは栓をされている。対向する末端面5で開いている他方の群のセル10は、栓11により対向する末端面4で閉じている。栓8および11の両方は、末端面4および5から所望の距離だけ内側に入っている。したがって、末端面4および5から見ると、交互に開いて閉じているセルまたはチャネルが格子模様かまたはチェッカーボード模様のいずれかにある。

【0014】次に図2を参照する。本発明の方法および装置12は、閉塞工程中に閉塞材料8の流動を容易にするバイブレータ（図示せず）に必要に応じて連結されたベースプレートまたはプラットホーム15上に搭載されたリング体13を含む。リング体13は好ましくは栓をすべきハニカム構造物1の外径に適合する内径を有する。リング

体13を、図4に示すように、ハニカム構造物に栓をするのに十分な閉塞材料8の層を所望の深さxまで満たす。構造物の一方の末端面で開いており、対向する末端面で閉じている第1群のセルを形成するために、ハニカム構造物の一方の末端面を、孔または開口部19が、開放セル21を塞ぐべきハニカム構造物1の対向する末端面のいずれかで少なくとも1つの対応する開放セル21上に位置するように、少なくとも1つの孔または開口部19を有するマスク17により覆う。その結果、閉塞材料により塞ぐべきセルのみがマスク17の対応する孔と一直線上に位置する。図2において、その面上にマスク17が配置された末端面5を、閉塞材料8と接するようにリング体13内に配置した。閉塞材料を開放セル21中に押し込めるために、ハニカム構造物の一方の対向する末端面4に対して、図2に示す矢印23の方向に力を加えた。

【0015】マスクに使用する材料には、どのような適切な材料を用いてもよい。例えば、プラスチックおよびライスペーパーがこの目的には有用であることが分かっている。また、ベースプレートおよびリング体をどのような適切な材料から構成してもよいが、例えば、プレキシグラスのような、閉塞材料とは反応しない適切な材料が好ましい。

【0016】必要に応じて、栓をすべきセルを水または閉塞材料の薄いスラリー中に浸漬することにより、閉塞の前にセルを予めぬらしてもよい。非常に濃い閉塞材料を用いる場合には、予めぬらすことは特に有用である。理論により拘束するつもりはないが、セル壁に水またはスラリーがあると、ペーストまたは閉塞材料がぬれた状態に維持され、そのペーストがセル壁に流動することによりセルが充填されてそれにより接触面積が増大する助けになるとを考えられている。セル壁を予めぬらした後、ハニカム構造物を部分的に乾燥して過剰の水を除去し、閉塞材料のばらつきをなくすためにぬれのレベルを最大にし、それから栓をした。濃いペーストの場合には、水または薄いスラリー中の浸漬後に予めぬらしたハニカム構造物の乾燥時間が短いほど、閉塞が良好となることが分かった。

【0017】また、セルの充填をしやすくし接触を改良するために、閉塞材料をセル中に押し込んでいるときに、振動力をベースプレートに加えてもよい。特に濃いペーストを用いる場合、振幅が小さいほど効果的である。濃いペーストにおいては、振幅が大きいと、閉塞材料を広げてセルを充填するというよりも、この閉塞材料がセル内で弾んでしまうために、セルを充填して栓をするのを阻害するように思われる。

【0018】閉塞の質を高めるために制御して調節してもよい工程の変数としては、閉塞材料のコンシスティンシーまたは濃さ、加える力の量と存続期間、振動力の振幅、および閉塞に先立ってぬらした構造物の乾燥時間等が挙げられる。濃いペーストはセル壁中で歪んで接触が

悪化する傾向にあり、一方で薄いペーストは栓の内側の末端にくぼみを形成する傾向にある。極めて薄いペーストの場合には、くぼみが深くなり一層はつきりして、ときには図8に示したように栓を通過するトンネルが形成されてしまう。

【0019】閉塞材料をセル壁に結合させるために、栓と一緒にハニカム構造物を乾燥して閉塞セメント中に含まれる水を除去して、適切な焼結温度で焼結した。焼結温度は、使用する閉塞材料に依存して変わる。例えば、標準的なコーチエライトセメントの栓は約1400℃の温度で焼結でき、一方で本発明の発泡セメントは900℃から1300℃の範囲の温度で焼結することができる。

【0020】第1群のセルが第1の末端面で開いて第2の末端面で閉じており、第2群のセルが第1の末端面で閉じて第2の末端面で開いており、第1群のセルの各々が第2群のセルとセル壁を共有し、ディーゼル微粒子フィルターのようなハニカム構造物を形成するために、第1の対向する末端面に栓をした後に、すでに栓をした末端面が上側となるようにハニカム構造物を回転させ、乾燥工程と焼結工程の前に、上述した工程を繰り返して、第2群のセルに対向する末端面で栓をした。

【0021】上述した方法、すなわち、図2に示すように底面から上側に向かってハニカム構造物に栓をすることにより、一層均一で結合が良好な栓が得られることが分かった。このことは、従来技術のアップダウン(up-down)閉塞方法を用いた図3に示した比較例と図4に示した本発明の方法を比較すると分かりやすい。本発明のボトムアップ手法(bottom-up approach)を用いて孔に栓をすることにより、従来技術の方法(アップダウン手法)において重力により生じる図3に示したようなテーパー現象が見られず、栓が弾丸形状とならずに、栓がセル壁に良好に接触して結合する。また、上方から下方に栓をした場合、濃い閉塞セメントは、セル中で曲がって回転する(すなわち、ねじれる)みみず状の栓を形成する傾向にあり、そのため、図5に示すようにペーストとセル壁との間の接触および接着が弱くなってしまう。これとは対照的に、本発明の下方から上方への手法を用いて同一の濃いペーストを使用してセルに栓をする場合、図6に示すように結合と接触が著しく改良される。

【0022】適しているものであればどのような閉塞材料を用いても栓を形成することができる。セル壁に接着でき、その熱特性が閉塞材料をハニカム構造物と同時に焼結できるような熱特性を有する閉塞材料を、本発明の方法に用いてもよい。好ましくは、ハニカム構造物を焼結した後に閉塞セメントをセルに施す。ハニカム構造物を焼結した後に閉塞を行なう場合には、ハニカム構造物の焼結温度以下の温度で焼結できるものであればいかなる閉塞材料を用いてもよい。コーチエライトハニカム構造物の場合には、米国特許第4,455,180号および再発行米国特許第31,405号に開示された閉塞材料を用いてもよ

い。

【0023】適切な発泡剤を加えた閉塞セメントを用いると、閉塞と結合を優れたものにできることが分かった。特に、炭化ケイ素が発泡剤として加えられたベータスボジュメン粉末ガラスからなる閉塞セメントを用いることにより閉塞を一層優れたものにできることが分かった。焼成する際に、組成物が最初に溶融し、次いで結晶化してベータスボジュメン相を形成する。炭化ケイ素により、溶融したガラスが発泡して膨脹し、栓とセル壁との間の空間を充填する。生成した構造物においては、図 10 7に示すように、結合と接触が優れている。その後、ベ\*

ベータスボジュメンガラス粉末	
酸化亜鉛 (AZO-66)	
酸化カルシウム	
炭化ケイ素 (600 グリット)	
メトセル (登録商標) A 4 M	
水	

直径が15.24 cm (6インチ) でありセル密度が15.5セル平方センチメートル (100 セル平方インチ) であるいくつかのコーディエライトハニカム構造物を約1400°Cの温度で焼結し、上記組成物を用いて上述したように栓をした。ペーストの組成とハニカム構造物のサイズに応じて36時間から42時間の範囲の焼成スケジュールを用いて、組成物AおよびBから形成した栓を有する構造物を次いで焼成し、それぞれ1085°Cおよび1176°Cの温度で結晶化させた。発泡した栓の外観は、図 7 に示した発泡セメントもしくはスポンジの外観と同様であった。栓25の多孔度は50%より大きく、孔の構造は不規則なものであった。セメントは非常にきつくセル壁に結合しており、ベータスボジュメンからなる栓25とコーディエライトからなるセル壁2との間である反応を生じるように思われた。さらに、気体が栓を通過するのを妨げる独立気泡27により気孔 (pore) が形成された。上述したように、焼成の際に結晶化してベータスボジュメンを形成できるものであればいかなる組成物を本発明に用いてもよい。

【0026】上述したような発泡セメントを用いると、発泡によりセル壁と反応する可能性があり、十分に充填がなされるために、従来の上方から下方への手法により得られた閉塞の品質は著しく改良される。

【0027】発泡セメントを形成するに必要とされる水の量は、生成するペーストの所望の厚さまたはコンシステンシーおよびそのペーストによりセルに栓をするのに利用できるまたは所望の力量に依存して変化する。上記組成物に関しては、水の含有量は、混合物に基づいて24%から27%までかまたは固体に基づいて約33%である。

【0028】本発明の発泡セメントを使用すれば、栓を上方から下方にセル中に挿入する従来の方法を用いてハ

\*一タスボジュメン相が結晶化してベータスボジュメン構造物または発泡セメント栓25を形成する。ベータスボジュメン組成物が発泡してセルを充填した後、閉塞セメント25がセル壁2と反応して結合する。発泡閉塞セメント25は、気体が閉塞材料25を通過するのを制限するかまたは実質的に妨げる独立気泡27からなる。

【0024】焼成の際に結晶化してベータスボジュメン構造物を形成できる範囲であればどのような組成物を本発明の実施に用いてもよいが、以下に示す組成物が特に有用であることが分かった。

#### 【0025】

##### 組成物

A	B
80.32%	80.43%
4.45	13.84
8.71	-
3.29	3.28
3.23	2.46
必要量	必要量

20 ニカム構造物に栓をする場合でさえ、栓とセル壁との結合が著しく高められることが分かった。これは、焼成中に本発明の発泡セメントが膨脹してテーパー形状の栓とセル壁との間の空間を満たし、したがって、そのような栓を十分に塞ぐためである。

【0029】発泡特性を有するものであれば、どのような閉塞セメントも本発明に使用することができる。例えば、理論により拘束するつもりはないが、コーディエライトは結晶質であるので、発泡が生じたために形成されるどのような気体も補足できないと考えられている。しか

30 しながら、コーディエライトに適切な添加剤を加えて、気体の補足性を高めて発泡を生じることができれば、コーディエライトを用いてもよい。また、焼成スケジュールの終りにガラスと反応してコーディエライトを形成できる酸化物を補うこと以外に、コーディエライトの組成に近い低共融ガラスを使用することも本発明には有用であろう。ガラス相段階で、気体を補足して発泡を生じてセル壁との結合を良好なものとし、それに続いて結晶質相の反応によりコーディエライトを形成する。

【0030】栓とセル壁との間の接触量を増やすため40 に、最初に栓をすべきセルを、閉塞の前に、水または好みしくは閉塞材料の薄いスラリーによりぬらしてもよい。閉塞組成物が濃くなるほど、セルをぬらすことにより望ましくなるであろう。閉塞材料が薄くなるほど、接触が良好になり、セルを塞ぐことが一層容易になる。しかしながら、上方から下方への手法を用いて閉塞を行なう場合、非常に薄いペーストは、セル壁をつたってたれるおよび/または上述したようにトンネルを形成してしまうことがある。閉塞材料に適切する厚さは、数ある中でハニカム構造物の壁厚およびセル密度のような

50 操作条件に依存して変わる。各々の用途に適する厚さを

実験により測定することができる。例えば、固体に基づいて50%までの水を有するコーチエライト閉塞セメントを本発明の方法にしたがって使用できることが分かった。しかしながら、薄いペーストは栓とセル壁との間の接触を良好なものとする傾向にあるが、そのようなペーストではトンネルきず、すなわち、図8に示したような割れめ、開放通路または分離が生じてしまうことがある。

### 【図面の簡単な説明】

【図1】栓をしたハニカム構造物の部分切欠図

【図2】図1のハニカム構造物を形成するのに用いた本発明の方法の一実施態様を示す部分切欠図

【図3】従来技術により栓をしたハニカム構造物において栓がテーパー形状であることおよび接触が悪いことを示す比較断面図

【図4】本発明により栓をしたハニカム構造物のセル壁と閉塞材料との間の接触と結合が改良され、栓が平で一層均一となつたことを示す断面図

【図5】ペーストとセル壁との間に空間がありその間の接触が悪いことを示す、濃い閉塞ペーストを用いた従来

10

技術により栓をしたセルの写真  
【図6】ペーストとセル壁との間の接触が比較的良好な、図5に用いたペーストと同一のペーストを用いた本発明の一実施態様により栓をしたセルを示す写真

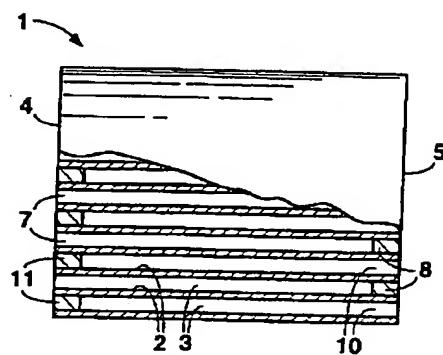
【図7】ペーストとセル壁との間の接触が良好な、本発明の発泡セメントを用いて栓をしたハニカム構造物のセルを示す写真

【図8】非常に薄い閉塞ペーストを用いた場合に生じ得るトンネルきずを示す写真

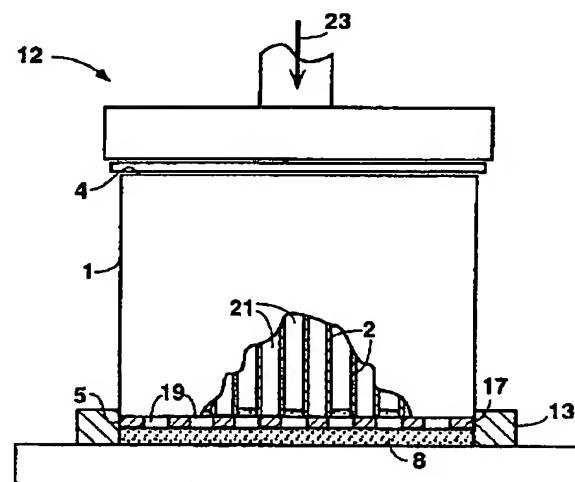
## 10 【符号の説明】

1	ハニカム構造物
2	セル壁
3	チャンネル
4、5	末端面
6	セル
8	閉塞材料
11	栓
13	リング体
15	ベースプレート
17	マスク

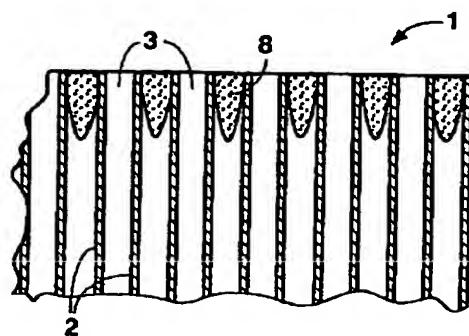
[圖 1]



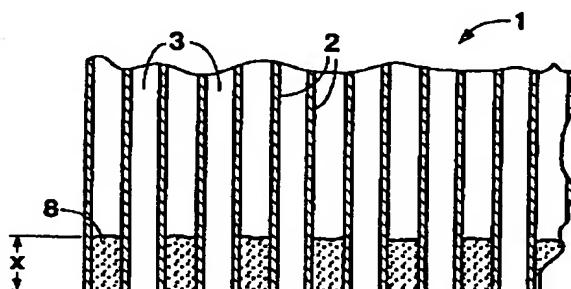
〔図2〕



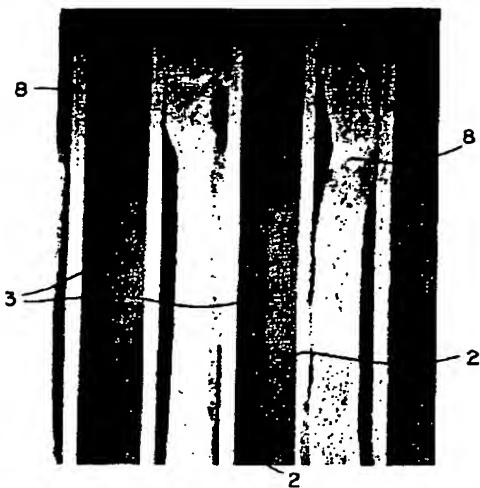
〔图3〕



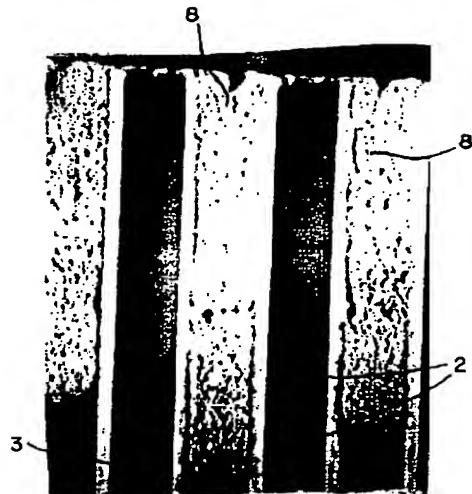
[図4]



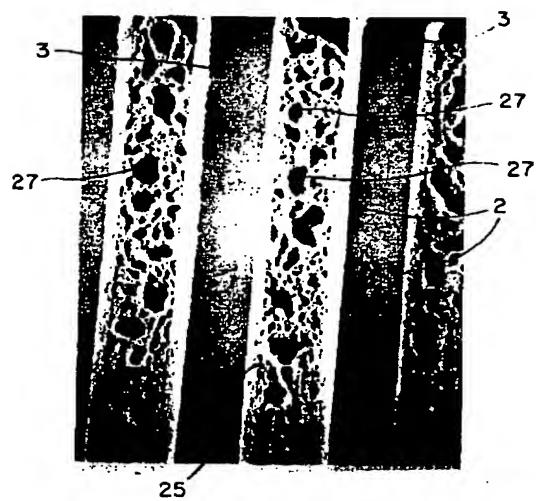
【図 5】



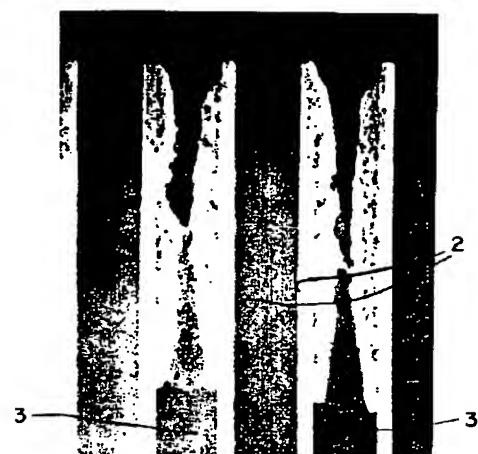
【図 6】



【図 7】



【図 8】



フロントページの続き

(72) 発明者 ジャニー ラケル クラズインスキー  
 アメリカ合衆国 ニューヨーク州 14901  
 エルミラ ウォールナット ストリート  
 965 1/2